

PEMBUATAN GAS DIFFUSION ELECTRODE DENGAN TEKNIK SCREEN PRINTING : PENGARUH MICROPOROUS LAYER TERHADAP STRUKTURMIKRO DAN KINERJA ELEKTROKATALIS

Holia Onggo, Anung Syampurwadi dan Rike Yudianti

*Pusat Penelitian Fisika (P2F) - LIPI
Jl. Cisit No. 21/154D, Bandung 40135
e-mail: holi001@lipi.go.id*

Diterima: 11 Januari 2013

Diperbaiki: 29 Mei 2013

Disetujui: 12 Juni 2013

ABSTRAK

PEMBUATAN GAS DIFFUSION ELECTRODE DENGAN TEKNIK SCREEN PRINTING : PENGARUH MICROPOROUS LAYER TERHADAP STRUKTURMIKRO DAN KINERJA ELEKTROKATALIS. Pembuatan *Gas Diffusion Electrode (GDE)* dengan teknik *screen printing* dilakukan untuk mengetahui efektivitas teknik ini terhadap kinerja dan strukturmikro elektrokatalis. Lapisan katalis dibuat dari Pt/C dan nafion ionomer dengan variasi rasio berat nafion ionomer/katalis (Pt/C) adalah 35/65; 25/75; dan 15/85. Perubahan morfologi permukaan lapisan katalis akibat perubahan rasio nafion/Pt/C diamati dengan *Scanning Electron Microscope (SEM)*. Analisis komposisi elemen permukaan dan *electrochemical surface area* dari partikel Pt dilakukan berturut-turut dengan *Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDS)* dan voltametri siklik. Hasil penelitian menunjukkan bahwa teknik *screen printing* cukup efektif untuk mendapatkan lapisan elektrokatalis dengan *Pt loading* rendah. Penelitian ini juga menjelaskan bahwa *microporous layer* yang dibentuk antara lapisan katalis dan *carbon paper* meningkatkan kinerja elektrokatalis.

Kata kunci: Lapisan elektrokatalis, *Microporous layer*, *Screen printing*

ABSTRACT

PREPARATION OF GAS DIFFUSION ELECTRODE (GDE) USING SCREEN PRINTING TECHNIQUE : EFFECT OF MICROPOROUS LAYER ON MICROSTRUCTURE AND ELECTROCATALYST PERFORMANCE. Preparation of Gas Diffusion Electrode (GDE) using screen printing technique has been performed to know the effectivity of the technique on the performance and microstructure of electrocatalyst. Catalyst layer was made from mixtures of Pt/C and nafion ionomer with nafion-Pt/C ratio of 35/65; 25/75 and 15/85. Change of morphological surface of electrocatalyst layer was observed by Scanning Electron Microscope (SEM). Analysis of elemental composition and electrochemical surface area of electrocatalyst was carried out by Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDS) and voltametry cyclic, respectively. The results show that screen printing constitute was more effective technique to get low Pt loading. An microporous layer was located between catalyst layer and carbon paper increase the electrocatalyst performance.

Keywords: Electrocatalyst layer, Microporous layer, Screen printing

PENDAHULUAN

Elektrokatalis merupakan bagian penting dalam sistem elektroda *Proton Exchange Membrane Fuel Cell (PEMFC)* yang sekaligus mampu menghantarkan proton, elektron dan mendistribusikan air. Mekanisme ini akan menentukan kinerja elektrokatalis itu sendiri sekaligus kinerja *PEMFC* secara keseluruhan. Peningkatan kinerja ini dapat dilakukan dengan komposisi dan ketebalan elektrokatalis yang optimal dan

pembentukan *three dimensional network* dalam sistem elektrokatalis yang dipengaruhi juga oleh teknik pelapisan yang digunakan.

Salah satu faktor yang menjadi kendala pembuatan *Gas Diffusion Electrode (GDE)* adalah *Pt loading* yang besar. Jumlah Pt perlu ditekan dengan tetap memperhatikan daerah reaksi pada lapisan katalis. Selain jumlah Pt, strukturmikro katalis juga mempengaruhi

porositas. Porositas ini akan mempengaruhi mekanisme aliran air, proton dan elektron. Semakin besar porositas makin cepat aliran air dan semakin efektif dalam mendistribusi gas, tetapi porositas yang ekstrim akan meningkatkan hambatan listrik elektroda [1]. Oleh karena itu penting untuk memperhatikan peningkatan porositas pada lapisan katalis. Untuk menghasilkan *Gas Diffusion Electrode (GDE)* dengan kinerja yang baik, porositas perlu diperhatikan baik dari segi struktur, ukuran dan distribusi sebaran pori. Elektroda yang baik memiliki struktur pori yang homogen dan tidak menghalangi aliran elektron dan gas. Ukuran pori pada *GDL* terbagi dalam 3 ukuran yaitu *macro-porous layer* (diameter pori 7 μm hingga 70 μm), *meso-porous layer* (0,05 μm hingga 7 μm) dan *micro-pori* (< 0,05 μm) dengan distribusi sebaran yang mempengaruhi laju bahan bakar dan air [2].

Pada penelitian ini dilakukan pembuatan *Gas Diffusion Electrode (GDE)* dengan membuat lapisan elektrokatalis di atas *GDL* secara langsung dan di atas *microporous layer (MPL)* dengan teknik *screen printing*. Hal ini dilakukan untuk mengamati pengaruh *MPL* terhadap kinerja *Gas Diffusion Electrode (GDE)* yang dihasilkan. Teknik *screen printing* adalah teknik yang mudah, dapat menghemat jumlah Pt yang digunakan dan dapat diproduksi dalam skala besar. Variasi rasio berat antara nafion ionomer dan katalis dilakukan untuk melihat pengaruh nafion terhadap strukturmikro yang terbentuk pada lapisan elektrokatalis. Pengamatan morfologi permukaan lapisan katalis dengan *Scanning Electron Microscope (SEM)* dan analisis komposisi elemen dilakukan dengan *Energy Dispersive X-ray Spectroscopy (EDS)* yang kinerjanya akan dihubungkan dengan menghitung luas permukaan Pt aktif dengan voltametrik siklik.

METODE PERCOBAAN

Bahan dan Alat

Pada penelitian ini digunakan elektro katalis berbasis *Carbon Vulcan XC-72 (Pt/C)* dengan *Pt loading* 20 wt.%, produk *Neuro Flash PTE LTD*. Nafion 117, (5 % berat nafion ionomer) digunakan untuk memberikan transfer proton (H^+) dalam sistem elektrokatalis. Tetrahidrofuran (THF) digunakan sebagai pelarut nafion untuk mendapatkan sifat koloidal. *Carbon paper* diperoleh dari *Gas Hub (Gas Hub Technology PTE LTD, Singapore)* digunakan sebagai *backing layer* dari katalis. *Carbon Vulcan XC-72* dengan luas permukaan 245 m^2/g dan *Multi Wall Carbon Nanotube (MWCNT)* dengan kemurnian 95% digunakan untuk pembuatan *Microporous Layer (MPL)*. Untuk meningkatkan hidrofobisitas elektrokatalis, *Fluorinated Ethylene Propylene (FEP) emulsion* ditambahkan sebagai *hydrophobic agent* pada *MPL*. Kontribusi triton X-100 sebagai surfaktan dan Nafion 117 diperlukan untuk meningkatkan kinerja katalis.

Pembuatan Gas Diffusion Electrode

Untuk mengetahui pengaruh *MPL* pada kinerja katalis, dilakukan perbandingan kinerja katalis yang dilapiskan pada permukaan *MPL* dan katalis yang dilapiskan langsung pada permukaan *carbon paper*. *MPL* dibuat dari campuran 60% *carbon Vulcan XC-72*; 40% *MWCNT* dan *FEP* dengan perbandingan 7 : 3 melalui proses sonikasi dan diaduk dalam aquabides dengan penambahan Triton-100 sebagai surfaktan. *Screen printing* lapisan di atas *carbon paper* dilakukan setelah penambahan *CMC* dan kemudian dikeringkan 120 $^{\circ}\text{C}$ selama 2 jam, dilanjutkan 300 $^{\circ}\text{C}$ selama 3 jam untuk meningkatkan fungsi *FEP* sebagai *binder* dalam strukturmikro elektrokatalis. Tinta katalis dibuat dari campuran serbuk katalis Pt/C (20 wt% *Pt loading*) dengan larutan nafion 5% dengan variasi rasio berat Pt/C : nafion ionomer adalah 65 : 35; 75 : 25 dan 85 : 15.

Pembuatan tinta katalis dilakukan pada kondisi koloid dengan pelarut tetrahidrofuran (THF) dengan konstanta dielektrik $\epsilon = 7,58$. Larutan nafion dan THF diaduk selama 5 menit, kemudian katalis Pt/C ditambahkan sedikit demi sedikit ke dalam campuran dan disonikasi selama 60 menit. Pelapisan tinta katalis dilakukan dengan teknik *screen printing* menggunakan *screen T150* kemudian dikeringkan pada 67 $^{\circ}\text{C}$, selama 2 jam dan *vacuum oven*, 80 $^{\circ}\text{C}$ selama 30 menit.

Karakterisasi

Carbon dan *Pt loading* ditentukan dengan teknik gravimetri sampel sebelum dan sesudah pelapisan. *Loading* bahan pembentuk (karbon, Pt dan nafion) ditentukan berdasarkan perhitungan perbandingan komponen bahan pembentuk terhadap berat lapisan total dalam suatu luasan. Hidrofobisitas ditentukan dengan mengukur sudut kontak menggunakan alat *Tantec Cam-plus Contact Angle Meter* dengan metode *half angle technique*.

Morfologi permukaan *GDE* dengan *MPL* dipelajari dengan membandingkan morfologi *GDE* tanpa *MPL* yang diamati dengan *Scanning Electron Microscope (SEM)*, JEOLJSM-6360LA. Analisis elemen di atas permukaan katalis (C, F dan Pt) pada permukaan *GDE* dilakukan dengan *Energy Dispersive X-ray Spectroscopy (EDS)*.

Karakterisasi *Electrochemical Surface Area (ECSA)* dari nanopartikel Pt pada permukaan *GDE* dilakukan dengan voltametrik siklik. Voltamogram ditentukan menggunakan potensiostat Gamry 750 yang dilengkapi dengan komputer dan *three electrode system*. Pengukuran dilakukan pada suhu kamar dalam larutan elektrolit 1N H_2SO_4 . Sampel diletakkan sebagai elektroda kerja (*working electrode*) (*GDE1*, *GDE2*, *GDE3*, *GDE4*, *GDE5*, dan *GDE6*) sedangkan Pt digunakan sebagai elektroda pembantu (*counter electrode*) dan *Saturated Calomel Electrode (SCE)* digunakan sebagai elektroda

referensi (*reference electrode*). Uji voltametrik siklik dilakukan untuk mengetahui kinerja katalis yang akan menentukan luas permukaan aktif nanopartikel Pt dengan cara mengukur muatan *Coulomb* yang terdesposisi pada permukaan katalis. *Electrochemical Surface Area (ECSA)*, *Chemical Surface Area (CSA)* dan efisiensi penggunaan Pt untuk katalis dihitung berdasarkan puncak adsorpsi/desorpsi hidrogen. Persamaan (1), Persamaan (2) dan Persamaan (3) yang digunakan adalah:

$$ECSA = Q_H / (L_{Pt} \times 0,21) \quad \dots\dots\dots (1)$$

$$CSA = 6 \times 10^3 / (d \times \rho) \quad \dots\dots\dots (2)$$

$$\text{Penggunaan Pt} = (ECSA / CSA) \times 100\% \quad \dots\dots (3)$$

Dimana :

- Q_H = Muatan berdasarkan luas di bawah puncak desorpsi hidrogen (mC/cm²)
- L_{Pt} = Pt loading (mg/cm²)
- 0,21 = Muatan yang terdesorpsi oleh polikristal Pt (mC/cm²)
- d = Diameter rata-rata partikel Pt (Å)
- ρ = Densitas Pt sebesar 21,4 g/cm³

HASIL DAN PEMBAHASAN

Sebelum penelitian ini dimulai, dilakukan analisis strukturmikro dari katalis (Pt/C) yang digunakan. Berdasarkan analisis tersebut, ukuran rata-rata partikel Pt adalah 2 nm hingga 5 nm dan karbon 50 nm hingga 75 nm dengan luas permukaan 160 m²/g. Untuk menentukan *carbon*, Pt dan *nafion loading*, teknik gravimetri dilakukan. Berdasarkan teknik ini, masing-masing sampel menghasilkan berat *MPL* yang berbeda walaupun kuantitas *MPL* yang digunakan adalah sama. Hal ini disebabkan teknik *screen printing* dilakukan secara manual selama proses pelapisan. Walaupun demikian pelapisan manual dengan teknik ini menghasilkan perbedaan berat *MPL* yang tidak terlalu besar yaitu (0,0116 (*GDE1*); 0,0136 (*GDE2*) dan 0,0176 g (*GDE3*) untuk ukuran *carbon paper* 2,6 cm x 2,6 cm. Hal ini juga dipertegas oleh peneliti sebelumnya [3] yang menyatakan bahwa jumlah pasta yang menempel dipengaruhi oleh tekanan, ukuran *screen*, kekentalan pasta, posisi rakel dan media yang akan dilapisi.

Pada percobaan yang dilakukan, pelapisan pasta menggunakan *screen* T114 menghasilkan *MPL* dengan *carbon loading* sebesar 1,20 (*GDE1*); 1,41 (*GDE2*) dan 1,82 mg/cm² (*GDE3*) (Tabel 1). Penambahan *carbon loading* dalam *MPL* akan meningkatkan strukturmikro lapisan yang mendukung pemanfaatan katalis lebih tinggi dan efisien di permukaan [4]. Variasi komposisi *nafion ionomer* dan katalis Pt/C (35/65; 25/75 dan 15/85) pada pelapisan katalis dilakukan untuk mendapatkan kadar *nafion (nafion loading)* yang berbeda. Pelapisan dilakukan pada 6 sampel yaitu pada *carbon paper* yang telah dilapisi *MPL (GDE1, GDE2, GDE3)* dan pada *carbon paper* tanpa *MPL (GDE4, GDE5, GDE6)*. *Screen* T150 menghasilkan lapisan katalis (CL) dengan berat antara 0,55 mg/cm² hingga 1,06 mg/cm². Pelapisan katalis langsung diatas *carbon paper* menghasilkan Pt loading yang lebih tinggi dibanding pelapisan katalis diatas *MPL*. Hal ini disebabkan porositas CP lebih tinggi dibandingkan *MPL* sehingga pada saat pelapisan dilakukan, tinta katalis lebih mudah masuk pada pori CP. Tabel 1 menunjukkan berkurangnya *nafion loading* diikuti oleh bertambahnya Pt loading sesuai dengan yang direncanakan.

Secara umum, Tabel 1 menunjukkan bahwa *carbon*, Pt, dan *nafion loading* dapat dikontrol melalui parameter eksternal yaitu komposisi *nafion* dan Pt/C. Reprodusibilitas antara *carbon*, Pt dan *nafion loading* yang dihasilkan dengan parameter eksternal sangat ditentukan oleh teknik yang digunakan. Korelasi ini berhubungan dengan perubahan *carbon*, Pt dan *nafion loading* akan menentukan kinerja *GDE* yang dihasilkan. Berdasarkan hasil yang ditunjukkan pada Tabel 1, lapisan katalis mempunyai sudut kontak dan konduktivitas listrik yang berbeda (Tabel 2). Terlihat bahwa semua sampel mempunyai sifat hidrofobik dengan sudut kontak > 90 °C. Penambahan *MPL* meningkatkan hidrofobisitas lapisan katalis karena adanya *FEP* sebagai *hydrophobic agent* pada struktur *MPL*.

Secara umum, terlihat bahwa meningkatnya *nafion loading* akan menambah hidrofobisitas lapisan katalis. Hal ini menunjukkan bahwa *nafion ionomer* selain sebagai konduktor proton juga meningkatkan hidrofobisitas katalis. Berdasarkan sifat konduktivitas elektronnya, terlihat bahwa tanpa adanya *MPL*, konduktivitas listrik lapisan katalis cenderung lebih tinggi (1,5-2,0 S/cm) dibandingkan dengan *MPL* (1,2-1,7 S/cm). Hal ini disebabkan *FEP* dan *nafion*

Tabel 1. Komposisi bahan pada *MPL* dan *CL* hasil *screen printing*

Kode sampel	Rasio berat (%) <i>nafion</i> : Pt/C	<i>Microporous Layer (MPL)</i>		<i>Catalyst Layer (CL)</i>		
		<i>FEP loading</i> (mg/cm ²)	<i>Carbon loading</i> (mg/cm ²)	<i>Carbon loading</i> (mg/cm ²)	Pt loading (mg/cm ²)	<i>Nafion loading</i> (mg/cm ²)
GDE1	35:65	0,51	1,20	0,28	0,07	0,19
GDE2	25:75	0,60	1,41	0,56	0,14	0,13
GDE3	15:85	0,78	1,82	0,64	0,16	0,08
GDE4	35:65	-	-	0,36	0,09	0,24
GDE5	25:75	-	-	0,48	0,12	0,20
GDE6	15:85	-	-	0,72	0,18	0,16

Tabel 2. Sudut kontak dan konduktivitas elektron dari Gas Diffusion Electrode (GDE)

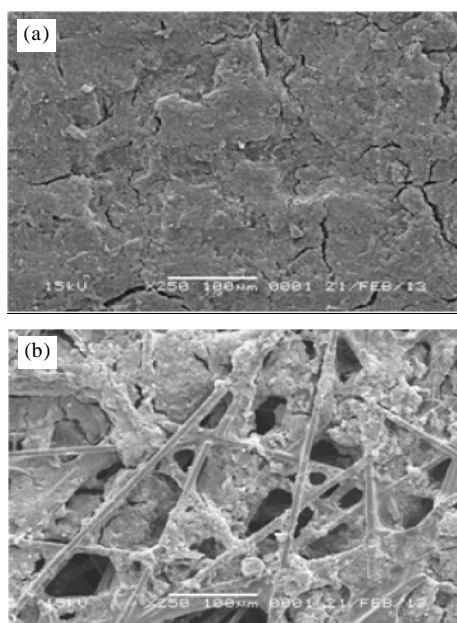
Kode sampel	Sudut kontak (°)	Konduktivitas elektron (S/cm)
GDE1	154	1,7
GDE2	139	1,2
GDE3	139	1,2
GDE4	135	2,0
GDE5	127	1,7
GDE6	131	1,5

ionomer yang terdapat pada *MPL* meningkatkan resistansi elektron yang mengakibatkan rendahnya konduktivitas elektron. Secara keseluruhan menunjukkan bahwa CP lebih konduktif dan lebih poros dibandingkan *MPL*.

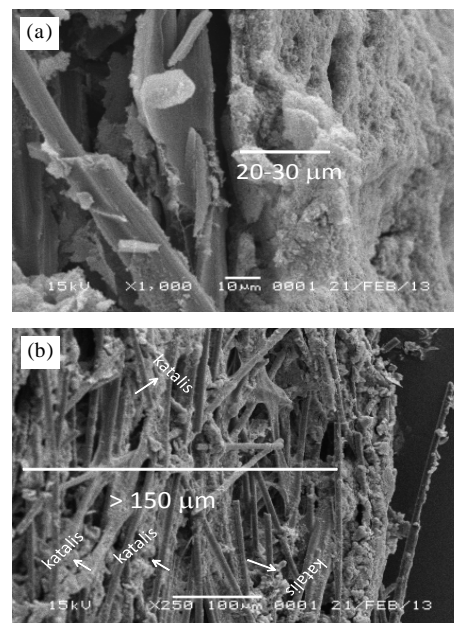
Gambar 1 menunjukkan morfologi katalis *GDE2* dan *GDE5* sebagai representasi lapisan elektrokatalis yang mempunyai *MPL* (*GDE2*) dan tidak mempunyai *MPL* (*GDE5*). Elektrokatalis pada *GDE2* mempunyai morfologi permukaan yang rata (Gambar 1(a)) di atas permukaan *MPL*, dimana *MPL* berfungsi sebagai penopang lapisan katalis sekaligus membantu mendistribusikan gas hingga ke permukaan katalis. *Cracking* yang terjadi pada permukaan katalis kemungkinan besar disebabkan oleh pengaruh pengeringan yang cepat dari *tetrahydrofuran* (*THF*) yang mempunyai titik didih rendah (67 °C) dan rendahnya reologi tinta. Sedangkan morfologi permukaan katalis yang tidak mempunyai *MPL* (*GDE5*) (Gambar 1(b)) cenderung tidak stabil dan cenderung masuk ke pori *GDL*. Hal ini mengakibatkan tertutupnya pori *GDL* yang mengganggu fungsinya untuk mendifusikan gas, bahkan tidak adanya *MPL* dalam struktur *GDE* dapat mengubah mekanisme reaksi yang terjadi dalam sistem *PEMFC* [5-7].

Gambar 2 merupakan morfologi penampang *GDE2* (Gambar 2(a)) dan *GDE5* (Gambar 2(b)) sebagai representasi *GDE* yang mempunyai *MPL* dan yang tidak mempunyai *MPL*. Elektrokatalis yang dilapiskan di atas *MPL* memberikan morfologi penampang yang sangat berbeda dengan yang tanpa *MPL*. *Interface* antara strukturmikro CP-*MPL*-katalis mempunyai batasan yang jelas walaupun perbedaan strukturmikro *MPL* dan katalis tidak terlihat jelas pada gambar ini. Untuk membedakannya dengan jelas, diperlukan perbesaran yang lebih besar. Tidak masuknya partikel katalis ke dalam struktur CP menunjukkan bahwa *MPL* sebagai *backing layer* dari lapisan katalis. Tanpa *MPL*, elektrokatalis akan menembus ke dalam lapisan *GDL* hingga 150 µm. Rasio ukuran pori yang kecil antara ukuran partikel katalis dengan ukuran pori *GDL* ($2,8 \times 10^{-5}$ hingga $7,1 \times 10^{-5}$) menyebabkan makin besarnya kemungkinan dan jumlah partikel katalis menembus *GDL*. Tertutupnya pori *GDL* akan mengganggu mekanisme kerja *PEMFC* untuk mendifusikan gas dan bahkan mengakibatkan reaksi elektrokimia terjadi tidak sebagaimana mestinya. Beberapa kluster partikel katalis yang ada pada kedalaman tertentu dari CP akan menyebabkan pemanfaatan katalis yang tidak efektif, ditunjukkan pada Gambar 2(b).

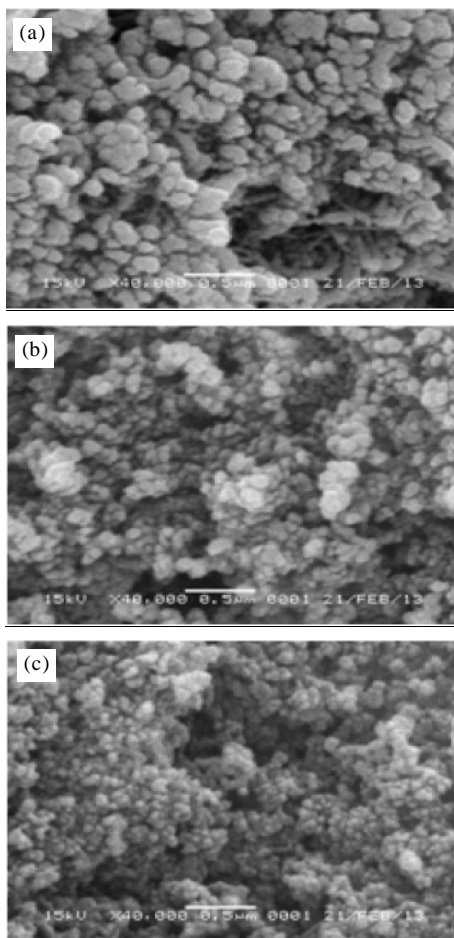
Gambar 3 memperlihatkan strukturmikro lapisan elektrokatalis dengan rasio nafion ionomer dan katalis (Pt/C) yang berbeda 35/65 (*GDE1*), 25/75 (*GDE2*), dan 15/85 (*GDE3*). Seperti sudah dijelaskan pada Tabel 1 bahwa rasio ini menghasilkan perbedaan Pt dan nafion loading. Strukturmikro elektrokatalis pada Gambar 3 mempunyai agregat yang lebih kecil dengan berkurangnya nafion ionomer. Nafion ionomer akan membentuk lapisan tipis yang cenderung terbentuk pada



Gambar 1. Morfologi permukaan (a). *GDE2* dan (b). *GDE5*



Gambar 2. Morfologi penampang (a). *GDE2* dan (b). *GDE5*



Gambar 3. Strukturmikro lapisan elektrokatalis (a). GDE1, (b). GDE2 dan (c). GDE3

permukaan katalis akibat interaksi molekular antara nafion ionomer dengan THF pada kondisi koloid yang membentuk strukturmikro tertentu berupa agregat katalis. Makin tinggi nafion loading akan cenderung membentuk agregat yang lebih besar.

Secara umum dapat dinyatakan bahwa perbedaan ukuran agregat Pt/C yang terbentuk pada GDE1, GDE2 dan GDE3 disebabkan interaksi molekular antara nafion ionomer, THF, dan elektrokatalis. Pada elektrokatalis GDE3 dengan Pt loading yang lebih tinggi ($0,16 \text{ mg/cm}^2$) mempunyai ukuran agregat yang lebih kecil dibandingkan dengan ukuran agregat pada GDE2 ($0,014 \text{ mg/cm}^2$) dan GDE1 ($0,07 \text{ mg/cm}^2$). Hal ini diperjelas dengan hasil analisis elemen (Tabel 3) yang menunjukkan bahwa Pt yang teridentifikasi pada GDE1, GDE2 dan GDE3 cenderung meningkat dari 17,5 ; 24,4 dan 24,86%. Makin tinggi nafion loading, disamping terbentuk agregat yang lebih besar, juga mikro pori akan terbentuk lebih besar dengan permukaan yang lebih kasar. Mikro pori ini akan membantu distribusi gas H_2 dan O_2 untuk sampai ke permukaan katalis. Makin kecilnya ukuran partikel tentunya akan meningkatkan surface area yang terbentuk yang meningkatkan transfer masa yang terjadi dalam sistem elektrokatalis. Berkurangnya ukuran partikel akan menurunkan hambatan transfer massa. Walaupun

Tabel 3. Analisis elemen pada permukaan elektrokatalis GDE1, GDE2 dan GDE3 menggunakan EDX

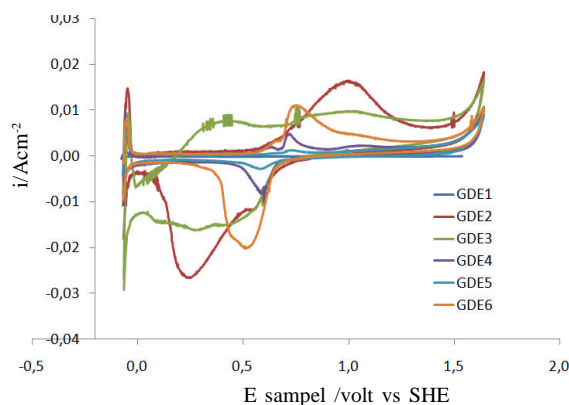
Unsur	Catalyst Layer pada GDE1 (% masa)	Catalyst Layer pada GDE2 (% masa)	Catalyst layer pada GDE3 (% masa)
C	69,31	69,89	70,27
F	13,19	5,71	2,87
Pt	17,50	24,40	24,86

demikian keseimbangan antara ukuran mikropori, agregat dan permukaan partikel Pt yang tertutup lapisan nafion akan menjadi suatu sistem yang menentukan kinerja elektrokatalis.

Untuk lebih menjelaskan hasil ini, analisis elemen dengan EDS dilakukan pada permukaan katalis, ditunjukkan pada Tabel 3. Pada tabel ini ditunjukkan unsur F yang merepresentasikan nafion ionomer yang ada pada permukaan elektrokatalis cenderung berkurang dari 13,19 ke 2,87% sebanding penambahan Pt loading dari 17,5 ke 24,86 dengan rata-rata berat karbon 70%. Tabel 3 juga mempertegas bahwa kenaikan Pt loading akan menurunkan nafion loadingnya dan kondisi ini sebanding dengan perubahan strukturmikro yang terjadi, seperti sudah dijelaskan sebelumnya.

Tingginya jumlah Pt yang dihasilkan pada permukaan elektrokatalis, belum tentu menghasilkan luas permukaan Pt aktif yang tinggi. Untuk mengetahui kinerja elektrokatalis yang terbentuk, perlu dilakukan pengukuran voltametri siklik dan analisis desorpsi hidrogen yang berhubungan dengan ECSA. Gambar 4 menunjukkan voltamogram dari elektrokatalis GDE1 sampai dengan GDE6. Pada gambar tersebut ditunjukkan puncak desorpsi hidrogen pada daerah -0,1 V hingga 0,1 V dengan scan rate 50 mVs^{-1} . Beberapa puncak pembentukan Pt-oxide di 0,7 V hingga 1,0 V dan Pt-oxide reduction di 0,2 V hingga 0,7 V dengan daerah double layer antara 0,1 V hingga 0,6 V terlihat pada Gambar 4.

Analisis Electrochemical Surface Area (ECSA) (Tabel 4) dilakukan berdasarkan perhitungan luas



Gambar 4. Voltamogram GDE1, GDE2, GDE3, GDE4, GDE5 dan GDE6 pada elektrolit $1\text{N H}_2\text{SO}_4$ dengan scan rate 50 mVs^{-1}

Tabel 4. Electrochemical surface area dan Pt Aktif dari elektrokatalis berdasarkan komposisi Carbon-Pt-Nafion Loading

Sampel	Carbon loading (mg/cm ²)	Pt loading (mg/cm ²)	Nafion loading (mg/cm ²)	ECSA (m ² /g)	ECA (m ² /g)	Pt aktif (%)
GDE1	1,20	0,07	0,19	4,5	80,1	5,6
GDE2	1,41	0,14	0,13	66,4	80,1	82,9
GDE3	1,82	0,16	0,08	62,3	80,1	77,7
GDE4	-	0,09	0,24	5,3	80,1	6,6
GDE5	-	0,12	0,20	26,3	80,1	32,8
GDE6	-	0,18	0,16	23,6	80,1	29,4

puncak desorpsi hidrogen pada daerah -0,1 V sampai dengan 0,1 V. GDE dengan penambahan MPL dan Pt loading > 0,1 mg/cm² menghasilkan peningkatan luas permukaan elektrokimia (ECSA) dari 62,3 m²/g menjadi 66,4 m²/g dengan ukuran agregat yang cenderung berkurang (Gambar 3) dengan berkurangnya nafion loading dari 0,13 menjadi 0,08 mg/cm². ECSA meningkat tajam dari 4,5 m²/g (Pt loading 0,07 mg/cm²) menjadi 66,4 m²/g (Pt loading 0,14 mg/cm²). Hal ini menunjukkan bahwa tingginya Pt loading memberikan probabilitas Pt aktif yang lebih tinggi dibandingkan Pt loading yang rendah. Berdasarkan hal ini juga menunjukkan bahwa nafion ionomer menurunkan ECSA sekaligus meningkatkan konduktivitas proton. Oleh karena itu optimalisasi komposisi terutama rasio nafion ionomer dan carbon loading sangatlah diperlukan. Tanpa lapisan MPL, ECSA rata-rata menurun cukup tajam menjadi 24,95 m²/g dari 64,35 m²/g dengan MPL. Kecenderungan yang sama terjadi bahwa Pt loading > 0,1 mg/cm² memberikan ECSA yang lebih tinggi. Penambahan MPL pada permukaan GDL memberikan pengaruh yang cukup besar terhadap peningkatan ECSA elektrokatalis, selain rendahnya kinerja elektrokatalis, tanpa MPL akan menurunkan kinerja sistem PEMFC secara keseluruhan.

Hal penting yang ditunjukkan pada Tabel 4 adalah bahwa Pt loading tidak selalu berbanding lurus dengan ECSA maupun Pt aktif. Terdapat batas optimal Pt loading untuk menghasilkan kinerja yang tinggi dalam hal ini ECSA dan Pt aktif yang menunjukkan bahwa kinerja elektrokatalis berkaitan dengan sistem keseluruhan yaitu komposisi dan strukturmikro. Secara teknis, penambahan Pt loading akan menambah ketebalan lapisan katalis, yang artinya penambahan ketebalan tertentu akan menimbulkan blocking nanopartikel Pt ke dalam substrat karbon sedangkan ketebalan yang tipis akan memberikan Pt loading yang rendah yang tidak memenuhi standar untuk mendapatkan ECSA dan Pt aktif tertentu.

KESIMPULAN

Penelitian ini menghasilkan beberapa kesimpulan yang cukup penting terhadap pembuatan elektrokatalis dengan metode *screen printing*. Telah dihasilkan lapisan elektrokatalis dengan Pt loading rendah (0,07 m²/g hingga 1,6 m²/g) dengan teknik *screen printing*. Strukturmikro elektrokatalis dipengaruhi komposisi nafion-Pt/C-pelarut yang menyebabkan perubahan *molecular conformation* berupa perubahan ukuran aglomerat dari strukturmikro elektrokatalis. Kinerja elektrokatalis yang direpresentasikan oleh ECSA dan Pt aktif dipengaruhi oleh platinum, nafion loading dan ukuran agregat. Kinerja elektrokatalis yang tinggi (ECSA dan Pt aktif yang tinggi) tidak selalu dihasilkan oleh Pt loading yang tinggi.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penelitian ini didanai dari Kompetitif 2013 Pusat Penelitian Metalurgi-LIPI. Penulis mengucapkan terima kasih kepada semua pihak yang memungkinkan terlaksananya penelitian ini. Juga terima kasih untuk Susi Sudarmi, Ari (P2M-LIPI) yang sudah membantu dalam pelaksanaan penelitian.

DAFTAR ACUAN

- [1]. JIUN ZHANG, *PEM Fuel Cell Electrocatalysts and Catalyst Layers, Fundamentals and Applications*, Springer-Verlag London Limited, (2008)
- [2]. X. WANG, H. ZHANG, J. ZHANG, H. XU, X. ZHU, J. CHEN, B. YI, *Journal of Power Sources*, **162** (2006) 474-479
- [3]. R. N. BONIFACIO, J. O. A. PASCHOAL, M. LINARDI, R. CUENCA, *Journal of Power Sources*, **196** (2011) 4680-4685
- [4]. L. R. JORDAN, A. K.S HUKLA, T. BEHRSING, N. R. AVERY, B. C. MUDDLE, M. FORSYTH, *Journal of Power Sources*, **86** (2000) 250-254
- [5]. M. HAN, S. H. CHAN, S. P. JIANG, *Journal of Power Sources*, **159** (2006) 1005-1014
- [6]. F. LUFRANO, E. PASSALACQUA, G. SQUADRITO, A. PATTI and L. GIORGI, *Journal of Applied Electrochemistry*, **29** (1999) 445-448
- [7]. ZIJIE LU, MICHAEL M. DAINO, CODY RATH, SATISH G. KANDLIKAR, *International Journal of Hydrogen Energy*, **35** (2010) 4222-4233